

Docket No.: 43888-304

**PATENT**

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re Application of	:	Customer Number: 20277
	:	
Shinji MINO, et al.	:	Confirmation Number:
	:	
Serial No.:	:	Group Art Unit:
	:	
Filed: March 12, 2004	:	Examiner: Unknown
	:	
For: SOLID STATE BATTERY	:	

**CLAIM OF PRIORITY AND  
TRANSMITTAL OF CERTIFIED PRIORITY DOCUMENT**

Mail Stop CPD  
Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

In accordance with the provisions of 35 U.S.C. 119, Applicants hereby claim the priority of:

**Japanese Patent Application No. 2003-069966, filed March 14, 2003**

cited in the Declaration of the present application. A certified copy is submitted herewith.

Respectfully submitted,

MCDERMOTT, WILL & EMERY

  
Michael E. Fogarty  
Registration No. 36,139

600 13<sup>th</sup> Street, N.W.  
Washington, DC 20005-3096  
(202) 756-8000 MEF:tlb  
Facsimile: (202) 756-8087  
**Date: March 12, 2004**

43888-304  
MINO, et al.  
March 12, 2004

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

*McDermott, Will & Emery*

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 3 年 3 月 1 4 日

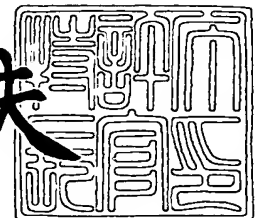
出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 3 - 0 6 9 9 6 6  
[ST. 10/C]: [ J P 2 0 0 3 - 0 6 9 9 6 6 ]

出 願 人  
Applicant(s): 松 下 電 器 産 業 株 式 会 社

2 0 0 4 年 1 月 1 9 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特 2 0 0 4 - 3 0 0 0 7 5 5

【書類名】 特許願

【整理番号】 2037150003

【提出日】 平成15年 3月14日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 10/12

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

    【氏名】 美濃 辰治

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

    【氏名】 石井 弘徳

【特許出願人】

    【識別番号】 000005821

    【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100097445

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 岩橋 文雄

【選任した代理人】

    【識別番号】 100103355

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 坂口 智康

【選任した代理人】

    【識別番号】 100109667

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 内藤 浩樹

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011305

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9809938

【書類名】 明細書

【発明の名称】 固体電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 基板上に下部集電体層、下部電極層と電解質層と上部電極層、上部集電体層とを積層して形成された発電要素と、  
少なくとも前記発電要素の側面に形成する保護膜とを備え、  
前記保護膜の膜厚は前記発電要素から外側の方向に連続的に減少することを特徴とする固体電池。

【請求項 2】 保護膜の膜厚が、前記基板表面から前記上部集電体層までの厚み以下であることを特徴とする請求項 1 記載の固体電池。

【請求項 3】 保護膜は、酸化シリコン系膜、窒化シリコン系膜、炭化シリコン系膜、酸化タンタル系膜、アルミナ系膜、酸化チタン系膜、樹脂の少なくとも 1 つを有することを特徴とする請求項 1 または 2 記載の固体電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は基板上に下部集電体層、下部電極層と電解質層と上部電極層、上部集電体層とを積層して形成された発電要素の側面に保護膜を形成した固体電池に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

従来の薄膜固体電池としては、外部環境から発電要素を保護する目的として保護膜により発電要素の全面を被覆する方法がとられている。薄膜固体電池の保護膜は樹脂、金属、セラミック、酸化シリコン、窒化シリコン、酸化チタン等の酸化物、窒化物等が一般的に知られている（例えば、特許文献 1、2）。特に、湿気による水分侵入に対しては完全に遮断する必要があるため、前記保護膜の厚膜化や多層化が図られている。

【0003】

図 3 は前記特許文献 1 に記載された従来の薄膜固体電池を示す断面図である。

図 3 において、基板 31 上に正極集電体 32、正極活物質 33、固体電解質 34、負極活物質 35、負極集電体 36 で積層された発電要素を保護膜で覆っている。保護膜はアルミナ層 37、酸化シリコン層 38、エポキシ樹脂層 39 の多層膜である。

#### 【0004】

図 4 は前記特許文献 2 に記載された従来の薄膜固体電池を示す断面図である。図 4 において、基板 41 上に正極集電体 42、正極活物質 43、固体電解質 44、負極活物質 45、負極集電体 46 で積層された発電要素を保護膜 47 で覆っている。保護膜 47 は窒化シリコンの単層膜である。

#### 【0005】

##### 【特許文献 1】

米国公開 2002-0071989 号公報

##### 【特許文献 2】

特開 2002-42863 号公報

#### 【0006】

##### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、前記従来の構成では、保護膜の多層化や厚膜化は薄膜電池全体の厚みを増大させ、電池の体積容量密度が低下する。つまり、発電要素の厚みを低く抑えても、それを覆う保護膜が厚くなれば、電池の薄型化効果が鈍ってしまうという課題を有していた。

#### 【0007】

また、発電要素上に保護膜を形成した場合、電池の充放電反応に伴い電極層が膨張収縮する際に、膜歪、応力が発生することで保護膜が割れてしまうという課題を有していた。

#### 【0008】

更に、厚膜化、多層化した保護膜上に薄い金属配線を配置すると、配線が段差により段切れしてしまい、電池上に金属配線ができないという課題も有していた。

#### 【0009】

本発明は、このような課題を払拭することができる保護膜の形状を特徴とし、電池全体の厚みが保護膜の厚みに影響されない薄膜固体電池を提供することを目的とする。

#### 【0010】

##### 【課題を解決するための手段】

前記従来の課題を解決するために、本発明の固体電池は基板上に下部集電体層、下部電極層と電解質層と上部電極層、上部集電体層とを積層して形成された発電要素と、少なくとも前記発電要素の側面に形成する保護膜とを備え、前記保護膜の膜厚は前記発電要素から外側の方向に連続的に減少する発電要素の側面にのみ形成する保護膜を備え、その保護膜の膜厚が発電要素から外側の方向に連続的に減少するように形成するものとする。

#### 【0011】

さらに、保護膜の膜厚が、前記基板表面から前記上部集電体層までの厚み以下であるものである。

#### 【0012】

さらに、保護膜は、酸化シリコン系膜、窒化シリコン系膜、炭化シリコン系膜、酸化タンタル系膜、アルミナ系膜、酸化チタン系膜、樹脂の少なくとも1つを有するものである。

#### 【0013】

##### 【発明の実施の形態】

以下本発明の実施の形態について、図面を参照しながら説明する。

#### 【0014】

##### (実施の形態1)

図1は、本発明の実施の形態1における固体電池の断面図である。図1において、図3と図4と同じ構成要素については同じ符号を用い、説明を省略する。

#### 【0015】

図1において、シリコン基板11上にプラズマCVD法 (Chemical Vapor Deposition) によってシリコン酸化膜を1500 Å形成した上に、正極の集電体として金属アルミ膜12を真空蒸着装置により、縦10

mm、横 15 mm のパターンで形成し、その上に  $\text{LiCoO}_2$  の正極活物質膜 13 を厚み  $5\ \mu\text{m}$ 、縦横 8 mm の  $64\ \text{mm}^2$  をスパッタにより形成し、その上に  $\text{Li}_2\text{S}-\text{SiS}_2-\text{Li}_3\text{PO}_4$  の固体電解質膜 14 を厚み  $2\ \mu\text{m}$ 、縦横 14 mm で形成し、更にその上に、グラファイトの負極活物質膜 15 を厚み  $5\ \mu\text{m}$ 、縦横 8 mm で形成し、順にレーザーアブレーション法により積層する。それらの成膜はそれぞれ、前述のサイズが空いた金属マスク (SUS304) を用いてパターンニングする。更に、その上に負極の集電体の金属銅膜 16 をパターンニングされた金属マスク (SUS304) を用いて、真空蒸着法で  $1\ \mu\text{m}$ 、縦 10 mm、横 15 mm で形成して発電要素を構成している。

#### 【0016】

次に、保護膜として酸化シリコン膜 17 を発電要素の側壁にのみ形成している。保護膜は膜厚が発電要素から外側の方向に連続的に減少するように形成を行う。形成方法は酸化シリコン膜 17 をスパッタにより形成してから、全面を反応性イオンエッチング (RIE) 装置を用いてエッチングする。この工程は半導体プロセスとして一般的なエッチバック方式によるものである。

#### 【0017】

これにより、発電要素の側壁にのみ酸化シリコン膜が残ることになる。

#### 【0018】

かかる構成によれば、保護膜が発電要素の側面にのみ形成され、更に保護膜の厚みが、酸化シリコン膜表面から上部集電体層の金属銅膜までの厚み以下となるため、電池全体の厚みが保護膜の厚みに影響されない薄膜固体電池を提供することができる。

#### 【0019】

さらにかかる構成によれば、保護膜の膜厚が発電要素から外側の方向に連続的に減少するように形成されるため、電池上に金属配線が可能となり、電極取り出し端子を自在に配線できる。

#### 【0020】

さらにかかる構成によれば、保護膜が発電要素の側面にのみ形成されるため、電池の充放電に伴う発電要素の体積膨張圧縮による電池の上下伸縮に対して、電



池側面には影響が少なく、保護膜のクラック発生を防止することができる。

#### 【0021】

(実施の形態2)

図2は、本発明の実施の形態2における固体電池の断面図である。図2において、図3と図4と同じ構成要素については同じ符号を用い、説明を省略する。

#### 【0022】

図2において、発電要素の構成は前記実施の形態1と同じにして、保護膜も同様に発電要素の側壁にのみ形成しており、膜厚は発電要素から外側の方向に連続的に減少するように形成を行う。ここでの保護膜の構造は多層膜としており、酸化シリコン膜27、窒化シリコン膜28、酸化シリコン膜29を順次堆積させた積層構造となっている。

#### 【0023】

かかる構成によれば、窒化シリコン膜の上下方向を酸化シリコン膜で挟んだ構造にすると、窒化シリコン膜の応力を緩和できるため保護膜割れの影響をさらに低減することができる。

#### 【0024】

ここで用いる保護膜の材料としては、酸化シリコン ( $\text{SiO}_2$ ) 系膜、窒化シリコン ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) 系膜、炭化シリコン ( $\text{SiC}$ ) 膜、酸化タンタル ( $\text{TaO}_2$ ) 系膜、アルミナ ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 系膜、酸化チタン ( $\text{TiO}_2$ ) 系膜、樹脂等の絶縁性の材料を用いることができる。

#### 【0025】

また、保護膜の構造としては、上記材料を適宜組み合わせた混合膜（例えば、酸化シリコンと窒化シリコンの混合膜等）や順次堆積させた積層構造を用いることができる。

#### 【0026】

なお、以上の実施の形態は、発電要素が単セルの場合であるが、複数セルを積層した場合も可能である。

#### 【0027】

上記本構成にすることで、電池全体の厚みが保護膜の厚みに影響されず、電池

上に金属配線が可能で、電池の充放電に伴う発電要素の体積膨張圧縮による保護膜のクラック発生を防止することができる。

### 【 0 0 2 8 】

#### 【発明の効果】

以上のように本発明の固体電池によれば、電池全体の厚みが保護膜の膜厚に影響されない薄型化に有利で、電池上に金属配線が可能で、電池の充放電に伴う発電要素の体積膨張圧縮による保護膜のクラック発生を防止することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

##### 【図 1】

本発明の実施の形態 1 における固体電池の断面図

##### 【図 2】

本発明の実施の形態 2 における固体電池の断面図

##### 【図 3】

従来の固体電池の断面図

##### 【図 4】

従来の固体電池の断面図

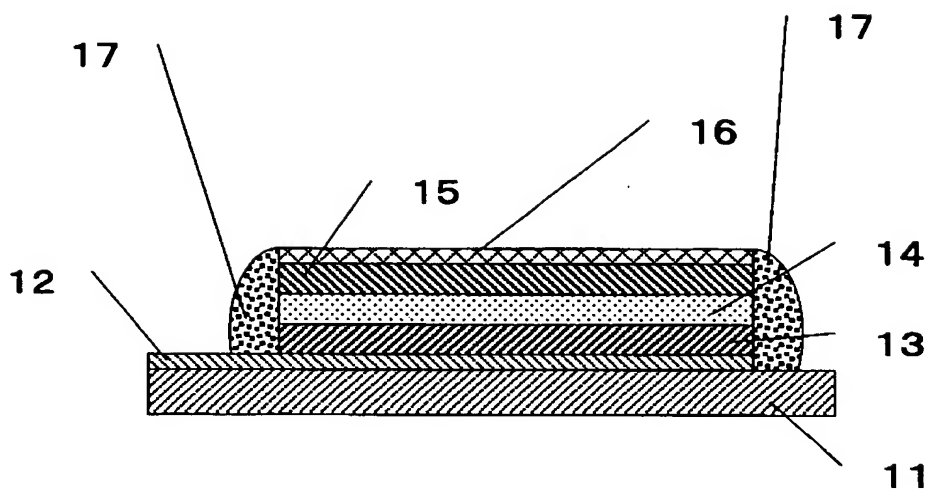
#### 【符号の説明】

- 1 1 シリコン基板
- 1 2 金属アルミ膜
- 1 3 正極活物質膜
- 1 4 固体電解質膜
- 1 5 負極活物質膜
- 1 6 金属銅膜
- 1 7 酸化シリコン膜
- 2 1 シリコン基板
- 2 2 金属アルミ膜
- 2 3 正極活物質膜
- 2 4 固体電解質膜
- 2 5 負極活物質膜

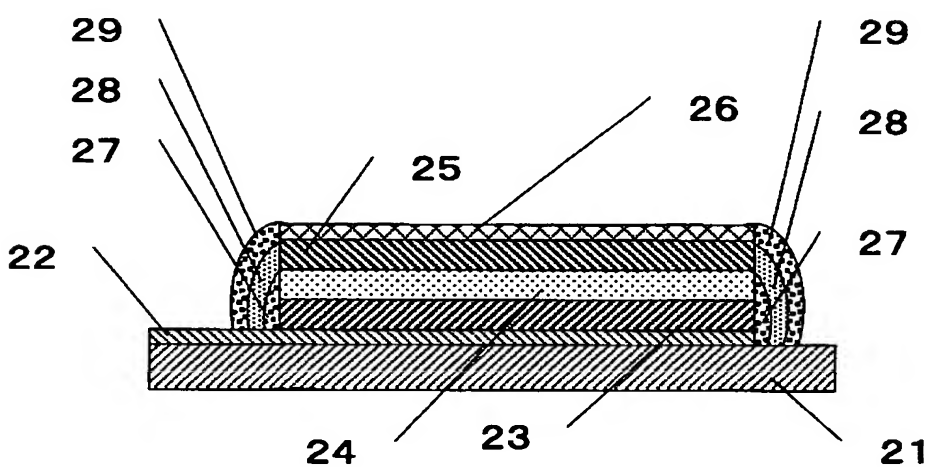
- 2 6 金属銅膜
- 2 7 酸化シリコン膜
- 2 8 窒化シリコン膜
- 2 9 酸化シリコン膜
- 3 1 基板
- 3 2 正極集電体
- 3 3 正極活物質
- 3 4 固体電解質
- 3 5 負極活物質
- 3 6 負極集電体
- 3 7 アルミナ層
- 3 8 酸化シリコン層
- 3 9 エポキシ樹脂層
- 4 1 基板
- 4 2 正極集電体
- 4 3 正極活物質
- 4 4 固体電解質
- 4 5 負極活物質
- 4 6 負極集電体
- 4 7 保護膜

【書類名】 図面

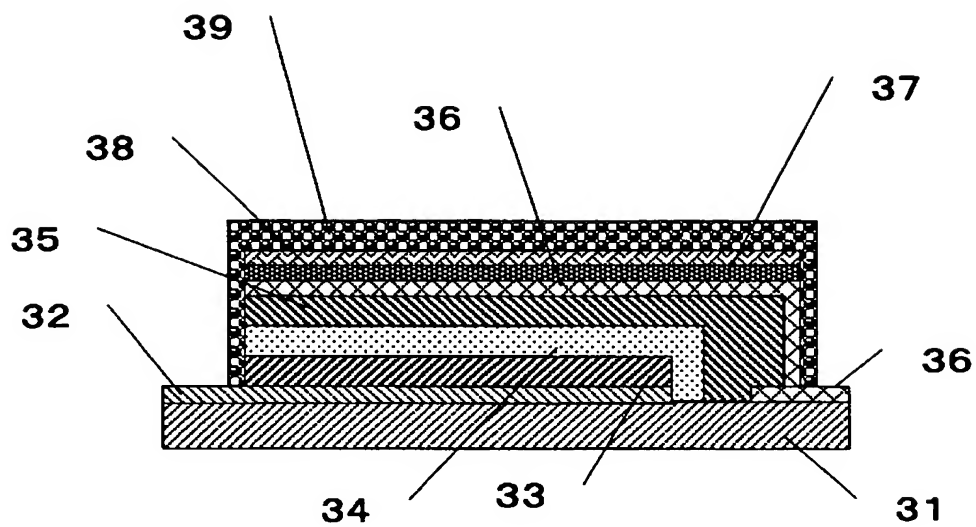
【図 1】



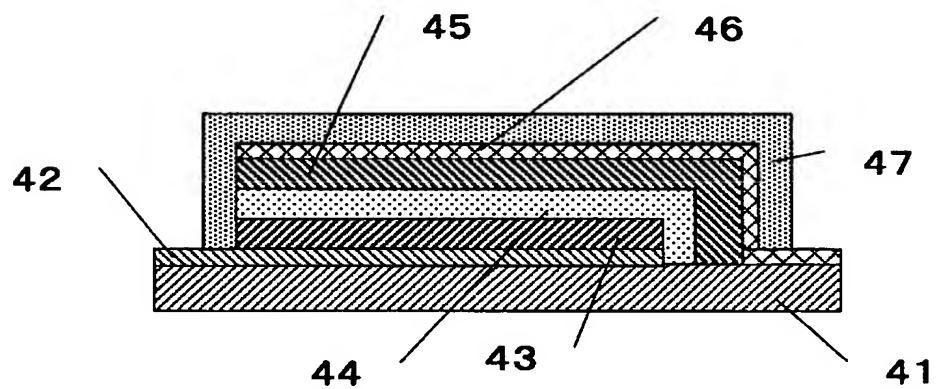
【図 2】



【図 3】



【図 4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 電池全体の厚みが保護膜の膜厚に影響されない固体電池を提供すること。

【解決手段】 保護膜が発電要素の側面にのみ形成され、更に保護膜の膜厚が、シリコン酸化膜表面から上部集電体層の金属銅膜までの厚み以下となるため、電池全体の厚みが保護膜の厚みに影響されない固体電池を提供することができる。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 3 - 0 6 9 9 6 6

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 5 8 2 1 ]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 8 日
[変更理由]	新規登録
住 所	大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地
氏 名	松下電器産業株式会社